

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-085922

(43)Date of publication of application : 26.03.2002

(51)Int.Cl. B01D 39/20  
F01N 3/02

(21)Application number : 2000-285878

(71)Applicant : IBIDEN CO LTD

(22)Date of filing : 20.09.2000

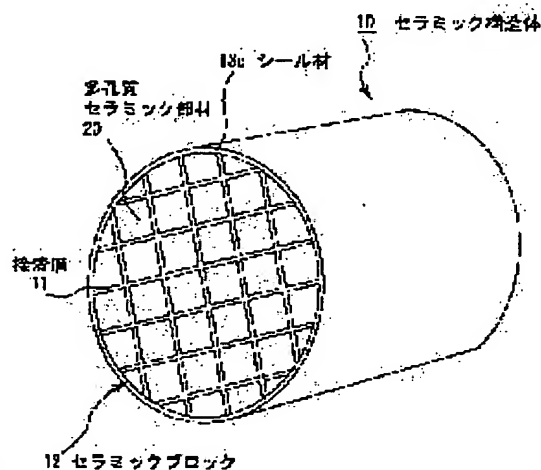
(72)Inventor : YOSHIDA YOSHIYUKI

## (54) CERAMIC STRUCTURE

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a durable ceramic structural body in which deposited particulates can completely be ignited and removed in its regeneration process due to a high heat conductivity for the adhered layers binding a plurality of the ceramic members and the strength of the adhered layers does not decrease, even when the adhered layers are heated beyond the allowable temperature limit of the organic binder contained in the adhered layers by high temperature exhaust gas or by the heat for the regeneration.

**SOLUTION:** More than one porous ceramic members of prism form, in which many through-holes are arranged successively in a longitudinal direction across partitions are bonded to form a ceramic block. The ceramic structure is constituted so that the partitions separating through-holes function as a filter for catching particles, and it is characterized by that at least a silane coupling agent, silica sol, organic binders, inorganic fibers and inorganic particles are contained in the adhesive layers.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's]

BEST AVAILABLE COPY

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] It is the ceramic structure characterized by being the ceramic structure which two or more porosity ceramic members of the prism configuration by which many breakthroughs separated the septum and were installed in the longitudinal direction side by side banded together through the glue line, and constituted the hollow clay building block, and was constituted so that the septum which separates said breakthrough might function as a filter for particle uptake, and said glue line containing a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle at least.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the ceramic structure used as a filter from which the particulate in the exhaust gas discharged by the internal combustion engine etc. is removed.

[0002]

[Description of the Prior Art] It poses a problem that the particulate contained in the exhaust gas discharged by internal combustion engines, such as cars, such as a bus and a truck, and a construction equipment, does damage to an environment or the body recently. By passing a porosity ceramic for this exhaust gas, the ceramic filter which carries out uptake of the particulate in exhaust gas, and purifies exhaust gas is proposed variously.

[0003] As for the ceramic structure which constitutes these ceramic filters, many breakthroughs are usually installed in an one direction side by side, and the septum which separates breakthroughs functions as a filter. That is, after the exhaust gas with which, as for the breakthrough formed in the ceramic structure, either the entry side of exhaust gas or the edge of an outlet side flowed into \*\*\*\*\* and the breakthrough of 1 with the filler passes the septum which surely separates a breakthrough, in case it flows out of other breakthroughs and exhaust gas passes this septum, a particulate is caught in a septum part and exhaust gas is purified.

[0004] In connection with the cleaning effect of such exhaust gas, a particulate accumulates on the septum part which separates the breakthrough of the ceramic structure gradually, blinding is started into it, and it comes to bar aeration into it. For this reason, this ceramic filter needs to carry out combustion clearance of the particulate which causes blinding using heating means, such as a heater, periodically, and needs to be reproduced.

[0005] However, in this regeneration, uniform heating of the ceramic structure is difficult, and since local generation of heat accompanying particulate combustion occurs, big thermal stress occurs. Moreover, by the thermal shock which the rapid temperature change of exhaust gas gives at the time of the usual operation, uneven temperature distribution arise inside the ceramic structure, and thermal stress occurs. Consequently, when the above-mentioned ceramic structure consisted of single ceramic members, the crack occurred and there was a trouble of giving the serious trouble for particulate uptake.

[0006] Therefore, for example, the particulate trap which reduced the thermal stress which acts on the ceramic structure is indicated by JP,60-65219,A by dividing the ceramic structure into two or more ceramic members.

[0007] Moreover, when banding two or more ceramic members, JP,1-63715,U is made to insert the sealant of a non-adhesive property in the clearance produced between each part material, and the particle uptake filter which prevented that exhaust gas leaked from the clearance between the ceramic structures is indicated.

[0008] However, although generating and destruction of a crack resulting from thermal stress could be prevented with the particle uptake filter indicated by this JP,1-63715,U, there was a trouble that each ceramic member was firmly unjoinable.

[0009] Moreover, in the regeneration which generally carries out combustion clearance of the deposited particulate, the temperature near the center of the ceramic structure tends to become high compared with the temperature near [ the ] the rim section. However, in the conventional ceramic structure, since the heat conductivity between the ceramic members which constitute this ceramic structure was not not much high, the particulate deposited near [ the ] the rim section also had the cinder and the problem that it was difficult to remove thoroughly.

[0010] furthermore, the time of the sealant (glue line) currently used for the conventional ceramic structure hardening -- migration (the phenomenon which a binder moves with desiccation clearance of a solvent is said) -- a lifting -- being easy -- since there was an inclination, it was a thing inferior to the bond strength of the above-mentioned sealant (glue line).

[0011] In order to solve such a problem, this invention persons developed the ceramic structure joined by the sealant (glue line) in which each ceramic member which is indicated by JP,8-28246,A contains an inorganic fiber, an inorganic binder, a heat-resistant organic binder, a heat-resistant inorganic particle, etc. previously.

[0012] The ceramic structure which such this invention persons developed previously In the low-temperature field to which combustion clearance of the above-mentioned organic binder is not carried out Generating of the above-mentioned migration is inhibited by adopting the organic binder which carries out desiccation hardening at an early stage. Maintenance of three-dimensions-association of inorganic fibers, The homogeneity and the adhesive property of an organization are improvable, enabling immobilization of the inorganic particle to an inorganic fiber because the inorganic fiber and the organic binder in the above-mentioned sealant (glue line) become entangled mutually.

[0013] Moreover, in the elevated-temperature field which the above-mentioned inorganic binder sinters, bond strength is maintainable with the effectiveness of a tangle to an inorganic fiber and an inorganic binder. In an elevated-temperature field, the above-mentioned inorganic binder is ceramic-ized by heating, and this is considered to be because for this ceramic to exist in each other interwoven with point of inorganic fibers and to contribute to junction to inorganic fibers and a ceramic member, although combustion clearance of the above-mentioned organic binder is carried out. Moreover, this inorganic binder was what can hold the bond strength of extent which is also a low-temperature field with desiccation and heating.

[0014] However, although it demonstrated good adhesive strength in the low-temperature field or the elevated-temperature field, in the moderate temperature field beyond the heat-resistant temperature of an organic binder, the ceramic structure which such this invention persons developed previously did not have the enough adhesive strength of a sealant (glue line), and the above-mentioned ceramic members may shift and it still had the room of amelioration in the field of maintenance of adhesive strength.

[0015]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Since the heat conductivity of this invention of the glue line which was made in order to solve these problems, and bands two or more ceramic members together is high, while being able to carry out combustion clearance of the deposited particulate thoroughly in the regeneration It aims at offering the ceramic structure which the bond strength of this glue line does not fall and is excellent in endurance with hot exhaust gas, heating at the time of playback, etc. even if it is the case where a glue line is heated to the temperature exceeding the heat-resistant temperature of the organic binder contained in a glue line.

[0016]

[Means for Solving the Problem] The ceramic structure of this invention is the ceramic structure which two or more porosity ceramic members of the prism configuration by which many breakthroughs separated the septum and were installed in the longitudinal direction side by side banded together through the glue line, and constituted the hollow clay building block, and was constituted so that the septum which separates the above-mentioned breakthrough might function as a filter for particle uptake, and the above-mentioned glue line is characterized by including a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle at least.

[0017]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the operation gestalt of the ceramic structure of this invention is explained based on a drawing.

[0018] The ceramic structure of this invention is the ceramic structure which two or more porosity ceramic members of the prism configuration by which many breakthroughs separated the septum and were installed in the longitudinal direction side by side banded together through the glue line, and constituted the hollow clay building block, and was constituted so that the septum which separates the above-mentioned breakthrough might function as a filter for particle uptake, and the above-mentioned glue line is characterized by including a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle at least.

[0019] Drawing 1 is the perspective view having shown typically 1 operation gestalt of the ceramic structure of this invention, and drawing 2 is the perspective view having shown typically the porosity ceramic member which constitutes the ceramic structure of this invention.

[0020] As shown in drawing 2, many breakthroughs 21 are formed in the porosity ceramic member 20 which constitutes the ceramic structure, and, as for the end section of the porosity ceramic member 20 which has these breakthroughs 21, the checker is filled up with the filler 22. Moreover, in other edges which are not illustrated, the breakthrough 21 with which the filler is not filled up into the end section is filled up with the filler.

[0021] The breakthrough 21 of a large number which constitute this ceramic member 20 surely passes the septum 23 of the porosity which separates between the breakthroughs 21 which the exhaust gas which flowed from the end section of the breakthrough 21 of 1 which is carrying out opening since only any 1 edge was filled up with the filler 22 adjoins, and it flows out through other breakthroughs 21. And in case exhaust gas passes a septum 23, the particulate in exhaust gas will be caught.

[0022] Drawing 1 shows the ceramic structure 10 which banded two or more porosity ceramic members 20 shown in drawing 2. Moreover, in drawing 1, the breakthrough 21 formed in the porosity ceramic member 20 is omitted.

[0023] In this ceramic structure 10, two or more porosity ceramic members 20 band together through a glue line 11, and constitute a hollow clay building block 12, and this glue line 11 contains a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle at least. Moreover, coating of the sealant 13a is carried out to the whole periphery section of a hollow clay building block 12, and the ceramic structure 10 is formed.

[0024] Although especially the configuration of the above-mentioned ceramic structure is not limited but the shape of a cylindrical shape and a prism configuration are also available, as shown in drawing 1 R> 1, the cylindrical shape-like thing is usually used well. Although especially the construction material of the porosity ceramic member which constitutes the above-mentioned ceramic structure 10 is not limited but various ceramics are mentioned, in these, thermal resistance is large, it excels in a mechanical property and large silicon carbide of thermal conductivity is desirable.

[0025] Moreover, as for these porosity members, what has the open pore whose average pore diameter is 1-40 micrometers is desirable, and such a porosity member of structure has the desirable thing which it was calcinated [ thing ], having used [ thing ] as the raw material what combined the powder 100 weight section which has the mean particle diameter of about 0.3-50 micrometers, and the powder 5 - 65 weight sections which have the mean particle diameter of about 0.1-1.0 micrometers, and made it sinter. Moreover, although especially the ingredient that constitutes sealant 13a is not limited, either, the thing containing heat-resistant ingredients, such as an inorganic fiber and an inorganic binder, is desirable. Sealant 13a may be constituted by the same ingredient as a glue line 11.

[0026] Next, the silane coupling agent which constitutes a glue line 11 is explained. Generally, a silane coupling agent is expressed for example, with the following general formula (1).

[0027]  $\text{RSiX}_3 \dots (1)$

[0028] Among the above-mentioned general formula (1), R is an organic functionality radical with the substituent combined with an organic material, and is specifically a vinyl group, a glycidoxy radical, an methacrylic radical, and a sulfhydryl group. Moreover, X is an inorganic material and a hydrolysis radical which reacts, and is specifically chlorine or an alkoxy group mainly.

[0029] It is placed between the interfaces of an organic material 40 and an inorganic material 41 by the silane coupling agent, and it plays the role of the mediation which combines both as it was shown in drawing 3  $R > 3$ , since it had such the chemical structure. Moreover, it is that an inorganic material joins together in response to the silanol group (SiOH) which each hydrolysis radical X decomposed since the three above-mentioned hydrolysis radicals X exist, and the above-mentioned silane coupling agent has also played the role of mediation of inorganic materials while playing the role [ inorganic material / an organic material and ] of mediation. In addition, among the above-mentioned general formula (1), although the silane coupling agent has three hydrolysis radicals, it may have two hydrolysis radicals.

[0030] While a glue line 11 has the good heat conductivity and bond strength including a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle at least, even if it is the case where the temperature of a glue line 11 exceeds the heat-resistant temperature of an organic binder, bond strength does not fall.

[0031] Although the reason bond strength does not fall is not clear even if the temperature of a glue line 11 which consists of such a presentation is the case where the heat-resistant temperature of an organic binder is exceeded, it can think as follows.

[0032] First, the case where the temperature of a glue line 11 is a low-temperature field is explained. In addition, a glue line 11 hardens the above-mentioned low-temperature field by desiccation, and the thing of the temperature field where a silane coupling agent, the silica sol, the organic binder, the inorganic fiber, and the inorganic particle exist in a glue line 11 is said.

[0033] In this low-temperature field, it is thought that the organic functional group (R) of a silane coupling agent reacted, and it has combined with the organic binder, and it combined with the silica sol, the inorganic fiber, and the inorganic particle, and it is further combined also with the ceramic member 20 through this siloxane radical through a Si-O-radical (siloxane radical) after it decomposes and a hydrolysis radical (X) turns into a silanol group.

[0034] therefore, the amount of association with an organic binder, the porosity ceramic member 20, a silica sol, an inorganic fiber, and an inorganic particle increases, and it is thought that the bond strength of the glue line 11 in this low-temperature field is boiled markedly, and improves. Moreover, like the seal object (glue line) of the conventional ceramic structure mentioned above, generating of migration is inhibited, and when an inorganic fiber and an organic binder become entangled, naturally improvement in adhesive strength can also be aimed at, enabling maintenance of three-dimensions-association of inorganic fibers, and immobilization of the inorganic particle to an inorganic fiber.

[0035] Next, the case where the temperature of a glue line 11 is a moderate temperature field is explained. In addition, a glue line 11 is heated and the above-mentioned moderate temperature field means a temperature field until a silica sol sinters and ceramic-izes from the temperature by which combustion clearance of the organic binder is carried out.

[0036] Since it sets to this moderate temperature field, and the organic binder in a glue line 11 burns and it is removed, Association with the organic binder by the reaction of an organic functional group (R) of a silane coupling agent which was explained in the above-mentioned low-temperature field, And although the improvement in the adhesive strength by tangle in an organic binder and an inorganic fiber cannot be obtained, the siloxane radical of a silane coupling agent is minded as mentioned above. A silica sol, an inorganic fiber, an inorganic particle, and ceramic member 20 comrades are in the condition of having joined mutually together, the bond strength of a glue line 11 does not fall and it is thought that good bond strength is maintained.

[0037] Next, the case where the temperature of a glue line 11 is an elevated-temperature field is explained. In addition, a glue line 11 is heated further, a silica sol sinters the above-mentioned elevated-temperature field, and the thing of the temperature field beyond the ceramic-ized temperature is said.

[0038] In this elevated-temperature field, while the silica sol in a glue line 11 is sintered and becoming a silica, the siloxane radical which constitutes a silane coupling agent is still maintaining association with a silica sol, an inorganic fiber, an inorganic particle, and a ceramic member.

[0039] Moreover, the small silica particle of particle size welds to an inorganic fiber, an inorganic particle, and ceramic member 20 grade, and such bonding strength becomes large further rather than the

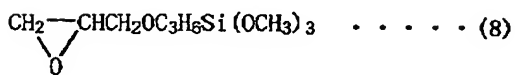
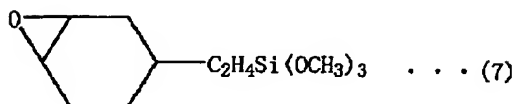
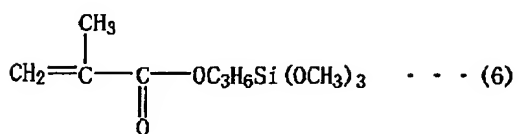
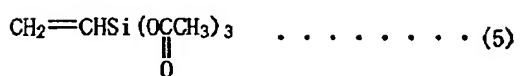
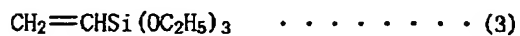
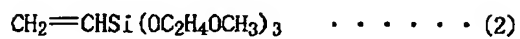
detailed silica particle generated by heating a silica sol, decomposition of a silane coupling agent, etc. generated.

[0040] Therefore, in the glue line 11, at least, by a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle being included, it should cross to the elevated-temperature field from the low-temperature field, the bond strength of a glue line 11 should be maintained good, and the ceramic structure of this invention should be excelled in endurance. Moreover, since it is placed between the front faces and the interior of an inorganic fiber or a silica sol by the inorganic particle, it can also keep good the thermal conductivity of the ceramic structure of this invention.

[0041] As the above-mentioned silane coupling agent, what 2 or three alkoxy groups have combined with the silicon atom is mentioned, for example into 1 molecule. Specifically Vinyl trichlorosilane (1), a vinyl tris (beta methoxyethoxy) silane (2), Vinyltriethoxysilane (3), vinyltrimetoxysilane (4), Vinyltriacetoxysilane (5), gamma-(methacryloyl oxypropyl) trimethoxysilane (6), beta-(3, 4 epoxycyclohexyl) ethyltrimethoxysilane (7), Gamma-glycidyloxypropyl trimethoxysilane (8) gamma-glycidyloxy propylmethyl diethoxysilane (9), N-beta (aminoethyl) gamma-aminopropyl trimethoxysilane (10), N-beta (aminoethyl) gamma-aminopropyl methyl dimethoxysilane (11), gamma-aminopropyl triethoxysilane (12) N-phenyl-gamma-aminopropyl trimethoxysilane (13) gamma-mercapto propyltrimethoxysilane (14), gamma-chloropropyltrimethoxysilane (15), etc. can be mentioned. These may be used independently and may use two or more sorts together. Moreover, the hydrolyzate water solution of the silane coupling agent obtained by mixing these silane coupling agents and water can also be used. In addition, the number written in addition behind the above-mentioned compound is equivalent to the number of the following structure expression.

[0042]

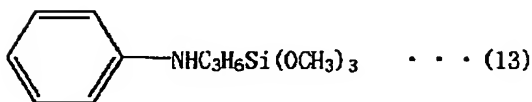
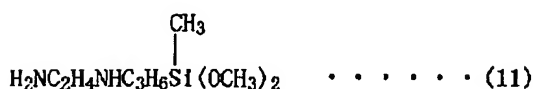
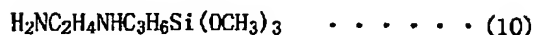
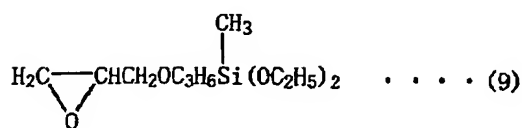
[Formula 1]



[0043]

[Formula 2]





[0044] It is solid content to the silica sol (SiO<sub>2</sub>) 100 weight section, the content of the above-mentioned silane coupling agent has the desirable 0.05 - 500 weight section, its 0.5 - 100 weight section is more desirable, and its 1 - 75 weight section is the most desirable. The bond strength of a glue line 11 will fall that the content of a silane coupling agent is under the 0.05 weight section in the above-mentioned moderate temperature field. On the other hand, if the 500 weight sections are exceeded, the stability of this paste at the time of preparing the paste used as a glue line 11 will fall remarkably.

[0045] The above-mentioned silica sol is a liquefied object which the 10-150-micrometer colloidal silica particle is distributing to stability preferably the mean particle diameter of 5-200 micrometers being carried out through water. A globular form and any of a non-globular form are sufficient as the configuration of the above-mentioned colloidal silica particle. The configuration and magnitude of colloidal silica are defined according to the manufacturing method of a silica sol.

[0046] Although this silica sol may be alkalinity and acid any, 30 or more alkaline things have desirable SiO<sub>2</sub> / M<sub>2</sub>O (M expresses molecules, such as alkali-metal atom or amine, and ammonium.) mole ratio, and its about nine to 12 thing is desirable especially as pH. Moreover, the silica sol from which particle diameter differs may be mixed and used, and a mixed sol may be used. As a silica sol used, it is SiO<sub>2</sub>.

That whose concentration is about 1 - 50 % of the weight is desirable, and what does not contain impure ion if possible is desirable.

[0047] It is solid content, the content of the silica sol in a glue line 11 has 5 - 40 desirable % of the weight, its 10 - 30 % of the weight is more desirable, and its 15 - 25 % of the weight is the most desirable. Lowering of bond strength is caused as the content of a silica sol is less than 5 % of the weight, and on the other hand, if it exceeds 40 % of the weight, decline in thermal conductivity will be caused.

[0048] As the above-mentioned organic binder, polyvinyl alcohol, methyl cellulose, ethyl cellulose, a carboxy cellulose, etc. can mention, for example. These may be used independently and may use two or more sorts together. In these, a carboxy cellulose is desirable.

[0049] It is solid content, the content of the organic binder in a glue line 11 has 0.01 - 5 desirable % of the weight, its 0.05 - 3 % of the weight is more desirable, and its 0.1 - 1 % of the weight is the most desirable. It becomes difficult to inhibit the migration generated in a glue line 11 as the content of an organic binder is less than 0.01 % of the weight. On the other hand, when it exceeded 5 % of the weight, and a glue line 11 is exposed to an elevated temperature and an organic binder is burned down, bond strength may fall.

[0050] As the above-mentioned inorganic fiber, at least one or more sorts of ceramic fiber chosen from a silica alumina, a mullite, an alumina, and a silica can mention, for example. Such an inorganic fiber can raise the bond strength of a glue line 11 by becoming entangled with a silica sol or an organic binder.

[0051] As for the shot content of the above-mentioned inorganic fiber, it is desirable that it is 1 - 10 % of the weight, it is more desirable that it is 1 - 5 % of the weight, and it is most desirable that it is 1 - 3 % of the weight. A manufacture top is difficult for carrying out a shot content to less than 1% of the weight, and on the other hand, when it exceeds 10 % of the weight, it has a possibility of damaging the wall surface of the ceramic member 20.

[0052] As for the fiber length of the above-mentioned inorganic fiber, it is desirable that it is 1-100 micrometers, it is more desirable that it is 1-50 micrometers, and it is most desirable that it is 1-20 micrometers. The property becomes it close to a particle that fiber length is less than 1 micrometer, and lowering of bond strength is caused. On the other hand, if it exceeds 100 micrometers, into a glue line 11, it will become difficult to distribute homogeneity and it will cause lowering of bond strength too.

[0053] Moreover, as for the diameter of fiber of the above-mentioned inorganic fiber, it is desirable that it is 3-15 micrometers. Since the reinforcement will fall that the diameter of fiber is less than 3 micrometers and it will be cut easily, lowering of bond strength is caused. On the other hand, if it exceeds 15 micrometers, a tangle to a silica sol or an organic binder will be checked, and lowering of bond strength will be caused too.

[0054] It is solid content, the content of the inorganic fiber in a glue line 11 has 25 - 60 desirable % of the weight, its 30 - 50 % of the weight is more desirable, and its 35 - 45 % of the weight is the most desirable. Lowering of the bond strength of a glue line 11 is caused as the content of an inorganic fiber is less than 25 % of the weight. On the other hand, if it exceeds 60 % of the weight, decline in thermal conductivity will be caused.

[0055] Moreover, as the above-mentioned inorganic particle, at least one or more sorts of the inorganic powder or whiskers which are chosen from silicon carbide, silicon nitride, and boron nitride are mentioned, for example. Such an inorganic particle can raise the thermal conductivity of a glue line 11 by being placed between the front face of the above-mentioned inorganic fiber, the front face of a silica sol, and the interior.

[0056] As for the mean particle diameter of the above-mentioned inorganic particle, it is desirable that it is 0.01-100 micrometers, it is more desirable that it is 0.1-15 micrometers, and it is most desirable that it is 0.1-10 micrometers. It is difficult for the inorganic particle of a large quantity to be needed, in order to secure a certain amount of thermal conductivity as mean particle diameter is less than 0.01 micrometers, and to obtain an inorganic particle with such a small particle size itself, and it causes the jump of a manufacturing cost. On the other hand, if it exceeds 100 micrometers, decline in adhesive strength and thermal conductivity will be invited to reverse.

[0057] It is solid content, the content of the inorganic particle in a glue line 11 has 10 - 50 desirable % of the weight, its 15 - 35 % of the weight is more desirable, and its 20 - 30 % of the weight is the most desirable. Decline in thermal conductivity is caused as the content of an inorganic particle is less than 10 % of the weight. On the other hand, if it exceeds 50 % of the weight, lowering of the bond strength in the time of an elevated temperature will be caused.

[0058] Moreover, it is desirable to use silicon carbide fiber instead of the above-mentioned inorganic fiber and an inorganic particle. The above-mentioned inorganic fiber is added in order to raise the bond strength of a glue line 11, and the above-mentioned inorganic particle is added in order to raise the thermal conductivity of a glue line 11, as mentioned above. However, in order that the above-mentioned inorganic particle may tend to make the bond strength of a glue line 11 decline, there is a fixed limitation in securing both the bond strength of a glue line 11, and the heat conductivity on high level. However, the bond strength and the heat conductivity of a glue line 11 can be secured now on high level by using silicon carbide fiber instead of the above-mentioned inorganic fiber and an inorganic particle.

[0059] Compared with adding an inorganic particle, the touch area increases because silicon carbide fiber becomes entangled in a glue line 11, and this is considered that thermal conductivity improves while it can aim at improvement in the bond strength of a glue line 11 by [ of the silicon carbide fiber in a glue line 11, a silica sol, and a silicon carbide fiber and an organic binder ] becoming entangled.

[0060] As for the fiber length of the above-mentioned silicon carbide fiber, it is desirable that it is 20-300 micrometers, and it is more desirable that it is 50-200 micrometers. The property may become it close to a particle that fiber length is less than 20 micrometers, and lowering of bond strength may be caused. On the other hand, if it exceeds 300 micrometers, into a glue line 11, it may become difficult to distribute homogeneity and it may cause lowering of bond strength too. Moreover, as for the diameter of fiber, it is desirable that it is 3-15 micrometers. Since the reinforcement of silicon carbide fiber will fall that the diameter of fiber is less than 3 micrometers and it will be cut easily, lowering of bond strength may be caused, and it is \*\*. On the other hand, if it exceeds 15 micrometers, it will be difficult to check a tangle in a silica sol, and to cause lowering of bond strength, and to obtain such thick silicon carbide fiber itself, and it will cause the jump of raw material cost.

[0061] When adding the above-mentioned silicon carbide fiber in a glue line 11, it is solid content, the content of the silicon carbide fiber in a glue line 11 has 3 - 80 desirable % of the weight, its 10 - 70 % of the weight is more desirable, and its 40 - 60 % of the weight is still more desirable. Decline in thermal conductivity is caused as the content of silicon carbide fiber is less than 3 % of the weight, and on the other hand, when it exceeded 80 % of the weight and a glue line 11 is exposed to an elevated temperature, lowering of bond strength is caused.

[0062] Although little moisture, a little solvent, etc. may be included in the glue line 11 besides a silane coupling agent, the silica sol, the organic binder, the inorganic fiber, and the inorganic particle, such moisture, a solvent, etc. of the silica sol middle class usually almost disperse with heating after applying the paste for glue lines etc.

[0063] The heat conductivity of the glue line which bands two or more ceramic members together since it is what contains a silane coupling agent, a silica sol, an organic binder, an inorganic fiber, and an inorganic particle at least in the glue line to which the ceramic structure of this invention bands two or more ceramic members together as above-mentioned is high, and combustion clearance of the particulate deposited in the regeneration can be carried out thoroughly. Furthermore, since the bond strength in a moderate temperature field of the above-mentioned glue line which constitutes the ceramic structure of this invention is also large, even if it is the case where a glue line is heated by hot exhaust gas, heating at the time of playback, etc., it becomes what the adhesive strength of the above-mentioned glue line did not decline, and was excellent in endurance.

[0064] Next, the manufacture approach of the ceramic structure of this invention is explained. In addition, suppose that silicon carbide is used as a raw material of the ceramic member which constitutes the ceramic structure in the following explanation.

[0065] A silicon carbide Plastic solid is produced first. After mixing silicon carbide powder, a binder, and dispersion-medium liquid and preparing the mixed constituent for Plastic solid manufacture in this

process, by performing extrusion molding of this mixed constituent The column-like silicon carbide Plastic solid with which many breakthroughs separated the septum and were installed in the longitudinal direction side by side is produced, by drying this Plastic solid after this, dispersion-medium liquid is evaporated and the silicon carbide Plastic solid containing silicon carbide powder and resin is produced. In addition, little dispersion-medium liquid may be contained in this silicon carbide Plastic solid.

[0066] The configuration of the appearance of this silicon carbide Plastic solid is isomorphism-like mostly with the porosity ceramic member 20 shown in drawing 2 , and also may have the shape of the shape of an elliptic cylinder, or the triangle pole etc. In addition, at this process, the part equivalent to a filler 22 serves as a cavity.

[0067] It is not limited especially as the above-mentioned binder, for example, methyl cellulose, a carboxymethyl cellulose, hydroxyethyl cellulose, a polyethylene glycol, phenol resin, an epoxy resin, etc. can be mentioned. The loadings of the above-mentioned binder usually have desirable 1 - 10 weight section extent to the above-mentioned silicon carbide powder 100 weight section.

[0068] It is not limited especially as the above-mentioned dispersion-medium liquid, for example, alcohol [ , such as an organic solvent; methanol, ], such as benzene, water, etc. can be mentioned. Optimum dose combination of the above-mentioned dispersion-medium liquid is carried out so that the viscosity of the above-mentioned resin may become fixed within the limits.

[0069] Next, the process which obturates the above-mentioned breakthrough of the produced silicon carbide Plastic solid in the shape of an obturation pattern with a restoration paste as an obturation process is performed. In this case, some breakthroughs are obturated with a restoration paste by contacting the breakthrough of a silicon carbide Plastic solid in the mask with which puncturing was formed in the shape of an obturation pattern, and making a restoration paste invade into it from puncturing of the above-mentioned mask at the above-mentioned breakthrough.

[0070] Or it will not be the mixed constituent and this appearance which were used as the above-mentioned restoration paste on the occasion of manufacture of a ceramic Plastic solid, what added the dispersion medium further to the above-mentioned mixed constituent is desirable.

[0071] Next, the process which pyrolyzes the resin in the silicon carbide Plastic solid produced by the above-mentioned process as a cleaning process is performed. At this cleaning process, after laying the above-mentioned silicon carbide Plastic solid on the fixture for cleaning, it carries in to a cleaning furnace and usually heats at 400-650 degrees C under an oxygen content ambient atmosphere. Thereby, while resinous principles, such as a binder, vaporize, it decomposes and disappears and only silicon carbide powder remains mostly.

[0072] Next, the process which lays the degreased silicon carbide Plastic solid on the fixture for baking, and calcinates it as a baking process is performed. At this baking process, the column-like silicon carbide sintered compact with which many breakthroughs separated the septum and were installed in the longitudinal direction side by side is manufactured by heating the silicon carbide Plastic solid degreased at 2000-2200 degrees C under inert gas ambient atmospheres, such as nitrogen and an argon, and making silicon carbide powder sinter.

[0073] In addition, at a series of processes of resulting [ from a cleaning process ] in a baking process, the above-mentioned silicon carbide Plastic solid is carried on the fixture for baking, and it is desirable to perform a cleaning process and a baking process as it is. It is because it can prevent that can perform a cleaning process and a baking process efficiently, and carry, and a silicon carbide Plastic solid gets damaged in a substitute etc.

[0074] Thus, many breakthroughs separate a septum and it is installed in a longitudinal direction side by side, and after manufacturing the porosity silicon carbide sintered compact constituted so that the above-mentioned septum might function as a filter, the glue line mentioned above into the outer wall part of a porosity silicon carbide sintered compact is formed as a union process of this porosity silicon carbide sintered compact, more than one band the above-mentioned porosity silicon carbide sintered compact together, and a hollow clay building block is produced so that it may become predetermined magnitude.

[0075] Then, manufacture of the ceramic structure of this invention is ended by heating and stiffening [ dry and ] this hollow clay building block on 50-100 degrees C and the conditions of 1 hour, and

forming sealant 13a in that periphery section, after cutting using after that, for example, a diamond cutter etc., almost like the ceramic structure 10 which showed that periphery section to drawing 1.

[0076] By carrying out each process explained above, thermal conductivity is high and the ceramic structure excellent also in the bond strength of each ceramic member can be manufactured.

[0077]

[Example] Although an example is hung up over below and this invention is explained to it in more detail, this invention is not limited only to these examples.

[0078] The mixed constituent of a raw material was prepared by blending the alpha mold silicon carbide powder 70 weight section with example 1 mean particle diameter of 10 micrometers, the beta mold silicon carbide powder 30 weight section with a mean particle diameter of 0.7 micrometers, the methyl cellulose 5 weight section, the dispersant 4 weight section, and the water 20 weight section, and mixing to homogeneity. The extruding press machine was filled up with this mixed constituent, and the generation form of a honeycomb configuration was produced in a part for extrusion rate/of 2cm. This generation form is the same as that of the porosity ceramic member 20 shown in drawing 2 almost, that magnitude is 33mmx33mmx300mm, and, for an average pore diameter, the number of 1-40 micrometers and breakthroughs is 31-/cm<sup>2</sup>. The thickness of a septum was 0.35mm.

[0079] After using the above-mentioned mixed constituent and the bulking agent paste of this component for the desiccation object of this generation form and filling it up with a bulking agent in the predetermined part of the breakthrough of a silicon carbide sintered compact, the porosity silicon carbide member was manufactured by degreasing at 450 degrees C and carrying out heating baking at 2200 degrees C further.

[0080] 20 % of the weight (the content of SiO<sub>2</sub> in a sol: 30 % of the weight) of next, silica sols, As a silane coupling agent, 0.6 % of the weight of vinyl tris (beta methoxyethoxy) silanes, It is silica-alumina ceramic fiber (shot content: 2.7%) as an organic binder as 0.4 % of the weight of carboxymethyl celluloses, and an inorganic fiber. 26 % of the weight (mean particle diameter of 0.5 micrometers) of silicon carbide powder and 13 % of the weight of water were mixed and kneaded as 40 % of the weight of fiber length of 30-100 micrometers, and an inorganic particle, and the paste for glue lines was prepared.

[0081] Next, the above-mentioned paste for glue lines was stuck on the peripheral face of 1 of the produced porosity silicon carbide member, and the glue line was formed. And after laying other porosity silicon carbide members on this glue line, it was made to dry and harden in 100 degrees C and 1 hour, and the combination of the porosity silicon carbide member which two porosity silicon carbide members combined was produced.

[0082] The carboxymethyl cellulose of 0.4 % of the weight, the fiber length of 100-200 micrometers, 66 % of the weight of silicon carbide fiber of 3-15 micrometers of diameters of fiber, and 13 % of the weight of water were used as 0.6 % of the weight of vinyl tris (beta methoxyethoxy) silanes, and an organic binder as 20 % of the weight (the content of SiO<sub>2</sub> in a sol: 30 % of the weight) of example 2 silica sols, and a silane coupling agent, and also the combination of a porosity silicon carbide member was produced like the example 1.

[0083] Used 13.3 % of the weight (the content of SiO<sub>2</sub> in a sol: 30 % of the weight) of silica sols as an example of comparison 1 inorganic binder, and 44.2 % of the weight (shot content: 2.7%, fiber length:30-100mm) of silica-alumina ceramic fiber and 42.5 % of the weight of water were used as an inorganic fiber, and also the combination of a porosity silicon carbide member was produced like the example 1. In this example 1 of a comparison, when drying the glue line, the migration of the binder which constitutes a glue line, or a member occurred, and the glue line became an ununiformity and has carried out.

[0084] As an example of comparison 2 inorganic binder, used 0.5 % of the weight of carboxymethyl celluloses as 7 % of the weight (the content of SiO<sub>2</sub> in a sol: 30 % of the weight) of silica sols, and an organic binder, and 23.3 % of the weight (shot content: 3%, fiber length:0.1-100mm) of silica-alumina ceramic fiber, 30.2 % of the weight of silicon carbide powder with a mean particle diameter of 0.3 micrometers, and 39 % of the weight of water were used as an inorganic fiber, and also the combination

of a porosity silicon carbide member was produced like the example 1.

[0085] It measured by the approach of showing below the performance evaluation of the combination of the porosity silicon carbide member manufactured in examples 1-2 and the examples 1-2 of a comparison.

[0086] As shown in measurement drawing 4 of the assessment approach (1) bond strength, two triangle pole-like members have been arranged on a base, then the above-mentioned combination was laid so that the porosity silicon carbide member of ends might appear on the above-mentioned triangle pole-like member, the load was applied to the main glue line part, and the load when peeling arises in a glue line was measured. Moreover, assessment with the same said of the bond strength at the time of heating to 500 degrees C which is the moderate temperature field where an organic binder is disassembled and removed was performed, and in the still more nearly actual activity, since the rapid heating to about room temperature -900 degree C and quenching were expected, assessment with the same said of the thing after performing the thermo-cycle trial (100 times) which is room temperature -900 degree C was performed. The result is shown in the following table 1.

[0087] (2) It is the upside temperature T1 by installing the periphery on an enclosure and a heater 31 with a heat insulator 30, and heating for 30 minutes at 600 degrees C, after laying the above-mentioned combination so that two porosity silicon carbide members may be accumulated as shown in measurement drawing 5 of thermal conductivity. Lower temperature T2 The temperature gradient was measured. The result is shown in a table 1.

[0088]

[A table 1]

	初期状態の 接着強度 (MPa)	500 °C加熱後の 接着強度 (MPa)	ヒートサイクル後の 接着強度 (MPa)	T <sub>1</sub> , T <sub>2</sub> 温度差 (°C)
実施例 1	2. 5 8	2. 5 0	2. 4 5	2 0
実施例 2	2. 4 7	2. 3 8	2. 3 0	2 5
比較例 1	2. 4 2	1. 9 2	2. 3 5	8 0
比較例 2	2. 1 4	1. 7 1	2. 0 5	5 0

[0089] Although the typical bond strength of the glue line of the combination of the porosity silicon carbide member concerning examples 1-2 was 2.47-2.58MPa and the temperature gradient of the upper bed and soffit was 20-25 degrees C so that clearly from the result shown in a table 1, it was inferior to the combination of the porosity silicon carbide member which the typical bond strength of the glue line of the combination of the porosity silicon carbide member concerning the examples 1-2 of a comparison requires for 2.14-2.42MPa with 50-80 degrees C, and the temperature gradient all requires for an example. In addition, in this example and the example of a comparison, although what combined only two porosity silicon carbide members was used and the bond strength and thermal conductivity were measured, in order to combine many porosity silicon carbide members, the difference of the value of bond strength and thermal conductivity will become still more remarkable at the actual ceramic structure.

[0090]

[Effect of the Invention] Even if the temperature exceeds the heat-resistant temperature of an organic binder, it becomes what the bond strength of a glue line did not fall and was excellent in endurance, while it can carry out combustion clearance of the deposited particulate thoroughly in the regeneration, since the ceramic structure of this invention is as above-mentioned.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

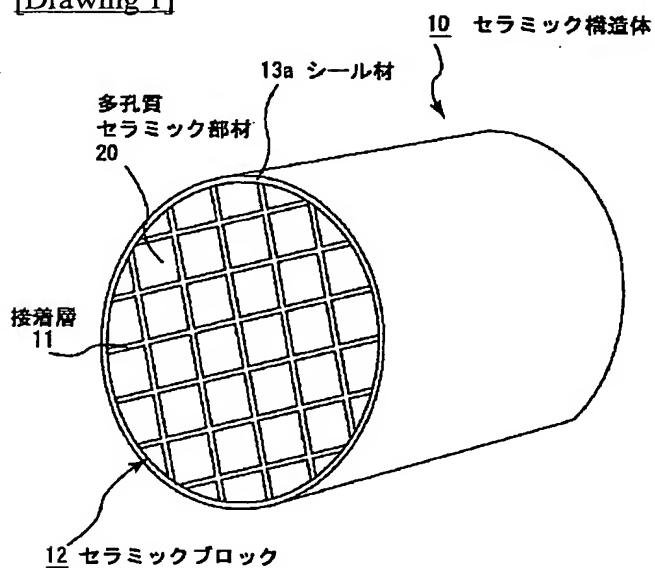
- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

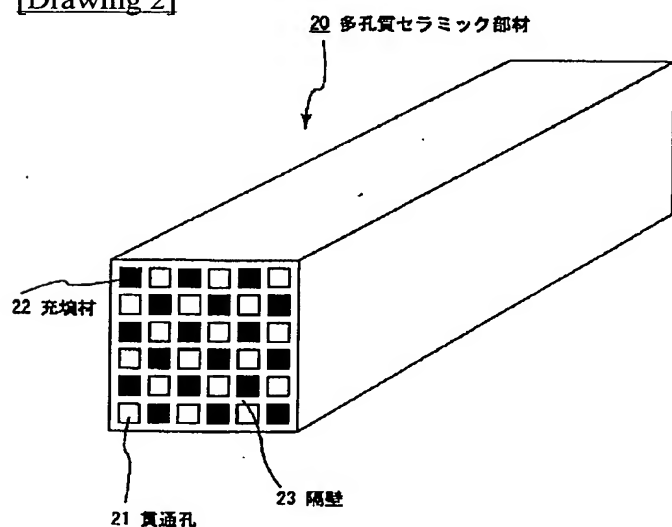
DRAWINGS

---

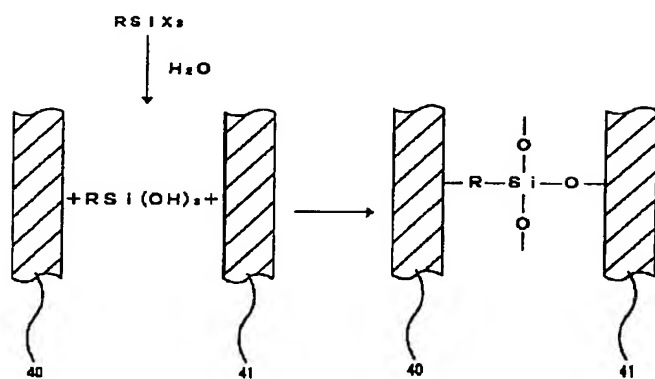
[Drawing 1]



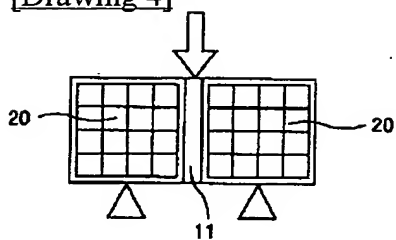
[Drawing 2]



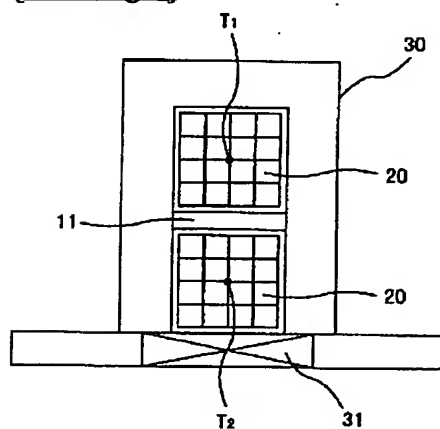
[Drawing 3]



[Drawing 4]



[Drawing 5]



---

[Translation done.]



(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開 2002-85922

(P 2002-85922A)

(43) 公開日 平成14年3月26日 (2002. 3. 26)

(51) Int. Cl. 7

識別記号

F I

テーマコード\* (参考)

B 0 1 D 39/20

B 0 1 D 39/20

D 3G090

F 0 1 N 3/02

3 0 1

F 0 1 N 3/02

3 0 1 B 4D019

審査請求 未請求 請求項の数 1

O L

(全 1 0 頁)

(21) 出願番号 特願2000-285878 (P2000-285878)

(22) 出願日 平成12年9月20日 (2000. 9. 20)

(71) 出願人 000000158

イビデン株式会社

岐阜県大垣市神田町2丁目1番地

(72) 発明者 吉田 良行

岐阜県揖斐郡揖斐川町北方1-1 イビデン

株式会社大垣北工場内

(74) 代理人 100086586

弁理士 安富 康男 (外2名)

F ターム (参考) 3G090 AA02

4D019 AA01 BA05 BR06 BB10 BD06

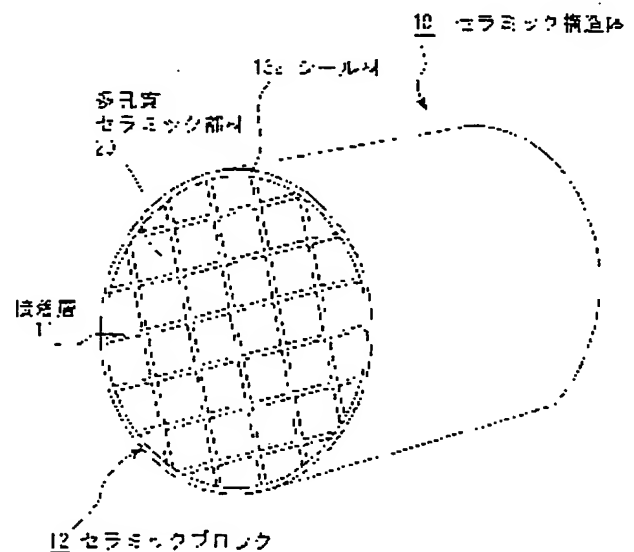
CA01 CB06

(54) 【発明の名称】 セラミック構造体

(57) 【要約】

【課題】 複数のセラミック部材を結束する接着層の熱伝導率が高いため、その再生処理において、堆積したパーティキュレート完全に燃焼除去することができるとともに、高温の排気ガスや再生時の加熱等により、接着層に含まれる有機バインダーの耐熱温度を超える温度まで接着層が加熱された場合であっても、該接着層の接着強度が低下することがなく、耐久性に優れたセラミック構造体を提供する。

【解決手段】 多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材が接着層を介して複数個結束されてセラミックブロックを構成し、上記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成されたセラミック構造体であって、上記接着層は、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むことを特徴とするセラミック構造体。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材が接着層を介して複数個結束されてセラミックブロックを構成し、前記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成されたセラミック構造体であって、前記接着層は、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むことを特徴とするセラミック構造体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、内燃機関から排出される排気ガス中のパティキュレート等を除去するフィルタとして用いられるセラミック構造体に関する。

## 【0002】

【従来の技術】バス、トラック等の車両や建設機械等の内燃機関から排出される排気ガス中に含有されるパティキュレートが環境や人体に害を及ぼすことが最近問題となっている。この排気ガスを多孔質セラミックを通過させることにより、排気ガス中のパティキュレートを捕集して排気ガスを浄化するセラミックフィルタが種々提案されている。

【0003】これらのセラミックフィルタを構成するセラミック構造体は、通常、一方向に多数の貫通孔が並設され、貫通孔同士を隔てる隔壁がフィルタとして機能するようになっている。すなわち、セラミック構造体に形成された貫通孔は、排気ガスの入り口側又は出口側の端部のいずれかが充填材により目封じされ、一の貫通孔に流入した排気ガスは、必ず貫通孔を隔てる隔壁を通過した後、他の貫通孔から流出するようになっており、排気ガスがこの隔壁を通過する際、パティキュレートが隔壁部分で捕捉され、排気ガスが浄化される。

【0004】このような排気ガスの浄化作用に伴い、セラミック構造体の貫通孔を隔てる隔壁部分には、次第にパティキュレートが堆積し、目詰まりを起こして通気を妨げるようになる。このため、このセラミックフィルタは、定期的にヒータ等の加熱手段を用いて目詰まりの原因となっているパティキュレートを燃焼除去して再生する必要がある。

【0005】しかし、この再生処理においては、セラミック構造体の均一な加熱が難しく、パティキュレートの燃焼に伴う局所的な発熱が発生するため、大きな熱応力が発生する。また、通常の運転時においても、排気ガスの急激な温度変化が与える熱衝撃等によって、セラミック構造体の内部に不均一な温度分布が生じ、熱応力が発生する。その結果、上記セラミック構造体が単一のセラミック部材から構成されている場合には、クラックが発生し、パティキュレートの捕集に重大な支障を与えるとといった問題点があった。

【0006】そのため、例えば、特開昭 60-6521

9号公報には、セラミック構造体を複数個のセラミック部材に分割することにより、セラミック構造体に作用する熱応力を低減させたパティキュレートトラップが開示されている。

【0007】また、実開平 1-63715号公報には、複数個のセラミック部材を結束させた際に、各部材の間に生じる隙間に、非接着性のシール材を介挿させ、セラミック構造体の隙間から排気ガスが漏れるのを防止した微粒子捕集フィルタが開示されている。

10 【0008】しかし、この実開平 1-63715号公報に開示された微粒子捕集フィルタでは、熱応力に起因するクラックの発生や破壊を防止することはできるが、各セラミック部材を強固に接合することができないという問題点があった。

【0009】また、一般に、堆積したパティキュレートを燃焼除去する再生処理においては、セラミック構造体の中央付近の温度がその外縁部付近の温度に比べて高くなりやすい。しかしながら、従来のセラミック構造体では、該セラミック構造体を構成するセラミック部材間の熱伝導率が余り高くなかったため、その外縁部付近に堆積したパティキュレートが燃え残り、完全に除去することが困難であるという問題もあった。

【0010】さらに、従来のセラミック構造体に使われていたシール材（接着層）は、硬化する際に、マイグレーション（溶媒の乾燥除去に伴ってバインダーが移動する現象をいう）を起こしやすい傾向があったため、上記シール材（接着層）の接着強度に劣るものであった。

【0011】このような問題を解決するため、本発明者らは、先に、特開平 8-28246号公報に開示されているような、各セラミック部材が耐熱性の無機繊維や無機バインダー、有機バインダー及び無機粒子等を含むシール材（接着層）で接合されたセラミック構造体を開発した。

【0012】このような、本発明者らが先に開発したセラミック構造体は、上記有機バインダーが燃焼除去されることのない低温領域においては、早期に乾燥硬化する有機バインダーを採用することで、上記マイグレーションの発生を抑止し、無機繊維同士の三次元的な結合の維持と、無機繊維への無機粒子の固定化を可能としつつ、上記シール材（接着層）中の無機繊維と有機バインダーとが相互に絡み合うことで、組織の均一性と接着性を改善することができる。

【0013】また、上記無機バインダーが焼結する高温領域においては、無機繊維と無機バインダーとの絡み合いの効果により、接着強度を維持することができる。これは、高温領域では、上記有機バインダーは燃焼除去されるが、上記無機バインダーが加熱によりセラミック化され、このセラミックが無機繊維同士の交錯点に存在し、無機繊維同士及びセラミック部材との接合に寄与するからであると考えられる。また、この無機バインダー

は、乾燥及び加熱により、低温領域でもある程度の接着強度を保持することができるものであった。

【0014】しかしながら、このような本発明者らが先に開発したセラミック構造体は、低温領域や高温領域においては良好な接着力を発揮するものであったが、有機バインダーの耐熱温度を超えた中温領域においては、シール材（接着層）の接着力が充分でなく上記セラミック部材同士がずれることがあり、接着力の維持の面で依然として改良の余地があった。

【0015】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、これらの問題を解決するためになされたもので、複数のセラミック部材を結束する接着層の熱伝導率が高いため、その再生処理において、堆積したパティキュレート完全に燃焼除去することができるとともに、高温の排気ガスや再生時の加熱等により、接着層に含まれる有機バインダーの耐熱温度を超える温度まで接着層が加熱された場合であっても、該接着層の接着強度が低下することがなく、耐久性に優れたセラミック構造体を提供することを目的とする。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明のセラミック構造体は、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材が接着層を介して複数個結束されてセラミックブロックを構成し、上記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成されたセラミック構造体であって、上記接着層は、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むことを特徴とするものである。

【0017】

【発明の実施の形態】以下、本発明のセラミック構造体の実施形態について、図面に基づいて説明する。

【0018】本発明のセラミック構造体は、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された角柱形状の多孔質セラミック部材が接着層を介して複数個結束されてセラミックブロックを構成し、上記貫通孔を隔てる隔壁が粒子捕集用フィルタとして機能するように構成されたセラミック構造体であって、上記接着層は、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むことを特徴とするものである。

【0019】図1は、本発明のセラミック構造体の一実施形態を模式的に示した斜視図であり、図2は本発明のセラミック構造体を構成する多孔質セラミック部材を模式的に示した斜視図である。

【0020】図2に示したように、セラミック構造体を構成する多孔質セラミック部材20には、多数の貫通孔21が形成されており、これら貫通孔21を有する多孔質セラミック部材20の一端部は、市松模様

2が充填されている。また、図示しない他の端部においては、一端部に充填材が充填されていない貫通孔21に充填材が充填されている。

【0021】このセラミック部材20を構成する多数の貫通孔21は、いずれか一端部のみに充填材22が充填されているため、開口している一の貫通孔21の一端部より流入した排気ガスは、隣接する貫通孔21との間を隔てる多孔質の隔壁23を必ず通過し、他の貫通孔21を通過して流出する。そして、排気ガスが隔壁23を通過する際に、排気ガス中のパティキュレートが捕捉されることになる。

【0022】図1は、図2に示した多孔質セラミック部材20を複数個結束させたセラミック構造体10を示している。また、図1においては、多孔質セラミック部材20に形成された貫通孔21を省略している。

【0023】このセラミック構造体10では、多孔質セラミック部材20が接着層11を介して複数個結束されてセラミックブロック12を構成し、この接着層11は、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むものである。また、セラミックブロック12の外周部の全体に、シール材13aがコーティングされてセラミック構造体10が形成されている。

【0024】上記セラミック構造体の形状は特に限定されず、円柱形状でも角柱形状でも構わないが、通常、図1に示したように円柱形状のものがよく用いられている。上記セラミック構造体10を構成する多孔質セラミック部材の材質は特に限定されず、種々のセラミックが挙げられるが、これらのなかでは、耐熱性が大きく、機械的特性に優れ、かつ、熱伝導率も大きい炭化珪素が好ましい。

【0025】また、これらの多孔質部材は、平均気孔径が1～40 $\mu$ mの開放気孔を有するものが好ましく、このような構造の多孔質部材は、例えば、0.3～50 $\mu$ m程度の平均粒径を有する粉末100重量部と0.1～1.0 $\mu$ m程度の平均粒径を有する粉末5～65重量部とを組み合わせたものを原料として、焼成し、焼結させたものが好ましい。また、シール材13aを構成する材料も特に限定されるものではないが、無機繊維、無機バインダー等の耐熱性の材料を含むものが好ましい。シール材13aは、接着層11と同じ材料により構成されていてもよい。

【0026】次に、接着層11を構成するシランカップリング剤について説明する。一般に、シランカップリング剤は、例えば、下記一般式(1)で表される。

【0027】 $RSiX_3 \cdots (1)$

【0028】上記一般式(1)中、Rは有機材料と結合する置換基を持つ有機官能性基であり、具体的にはビニル基、グリシドキシ基、メタクリル基、メルカプト基である。また、Xは無機材料と反応する加水分解基であ

り、具体的には主に塩素またはアルコキシ基である。

【0029】このような化学構造を有することから、図3に示した通り、シランカップリング剤は、有機材料40と無機材料41との界面に介在し、両者を結合させる橋渡しの役割を果たすものである。また、上記加水分解基Xは3箇存在しているため、各加水分解基Xが分解したシラノール基(SiOH)に無機材料が反応して結合することで、上記シランカップリング剤は、有機材料と無機材料との橋渡しの役割を果たすとともに、無機材料同士の間での橋渡しの役割も果たしている。なお、上記一般式

(1)中、シランカップリング剤は、3箇の加水分解基を有しているが、2箇の加水分解基を有するものであってもよい。

【0030】接着層11は、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むものであり、良好な熱伝導率と接着強度とを有するとともに、接着層11の温度が有機バインダーの耐熱温度を超えた場合であっても、接着強度が低下することがない。

【0031】このような組成からなる接着層11の温度が、有機バインダーの耐熱温度を超えた場合であっても、接着強度が低下することがない理由は明確ではないが、以下の通りに考えることができる。

【0032】まず、接着層11の温度が低温領域である場合について説明する。なお、上記低温領域とは、接着層11が乾燥によって硬化し、接着層11中にシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子が存在している温度領域のことをいう。

【0033】この低温領域においては、シランカップリング剤の有機官能基(R)が反応して有機バインダーと結合しており、また、加水分解基(X)は分解してシラノール基となった後、Si-O-基(シロキサン基)を介し、シリカゾル、無機繊維及び無機粒子と結合し、さらに、このシロキサン基を介し、セラミック部材20とも結合していると考えられる。

【0034】従って、有機バインダーと多孔質セラミック部材20、シリカゾル、無機繊維及び無機粒子との結合量が増大し、この低温領域における接着層11の接着強度は格段に向上するものと考えられる。また、当然に、上述した従来のセラミック構造体のシール体(接着層)と同様に、無機繊維と有機バインダーとが絡み合うことにより、マイグレーションの発生を抑止し、無機繊維同士の三次元的な結合の維持と、無機繊維への無機粒子の固定化を可能にしつつ接着力の向上も図ることができる。

【0035】次に、接着層11の温度が中温領域である場合について説明する。なお、上記中温領域とは、接着層11が加熱されて、有機バインダーが燃焼除去される温度から、シリカゾルが焼結してセラミック化するまでの温度領域のことをいう。

【0036】この中温領域においては、接着層11中の有機バインダーは燃焼、除去されているため、上記低温領域で説明したような、シランカップリング剤の有機官能基(R)の反応による有機バインダーとの結合、及び、有機バインダーと無機繊維との絡み合いによる接着力の向上は得ることができないが、上述した通り、シランカップリング剤のシロキサン基を介して、シリカゾル、無機繊維、無機粒子及びセラミック部材20同士が相互に結合した状態となっており、接着層11の接着強度が低下することがなく、良好な接着強度が維持されていると考えられる。

【0037】次に、接着層11の温度が高温領域である場合について説明する。なお、上記高温領域とは、接着層11がさらに加熱されて、シリカゾルが焼結し、セラミック化する温度以上の温度領域のことをいう。

【0038】この高温領域においては、接着層11中のシリカゾルが焼結されてシリカとなるとともに、シランカップリング剤を構成するシロキサン基は、依然として、シリカゾル、無機繊維、無機粒子及びセラミック部材との結合を保っている。

【0039】また、シリカゾルが加熱されることにより生成した微細なシリカ粒子や、シランカップリング剤の分解等により生成したより小さな粒径のシリカ粒子が、無機繊維、無機粒子、セラミック部材20等に融着し、さらにこれらの結合力が大きくなる。

【0040】従って、接着層11中に、少なくとも、シランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むことで、低温領域から高温領域に渡って、接着層11の接着強度を良好に維持することができ、本発明のセラミック構造体を耐久性に優れたものとすることができる。また、無機粒子が、無機繊維やシリカゾルの表面及び内部に介在しているので、本発明のセラミック構造体の熱伝導率も良好に保つことができる。

【0041】上記シランカップリング剤としては、例えば、1分子中に、2又は3箇のアルコキシ基が珪素原子に結合しているものが挙げられ、具体的には、ビニルトリクロロシラン(1)、ビニルトリス(βメトキシエトキシ)シラン(2)、ビニルトリエトキシシラン

(3)、ビニルトリメトキシシラン(4)、ビニルトリアセトキシシラン(5)、γ-(メタクリロイルオキシプロピル)トリメトキシシラン(6)、β-(3,4エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン

(7)、γ-グリシジルオキシプロピルトリメトキシシラン(8)、γ-グリシジルオキシプロピルメチルジエトキシシラン(9)、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルトリメトキシシラン(10)、N-β(アミノエチル)γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン(11)、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン(12)、N-フェニルγ-アミノプロピルトリメトキシ

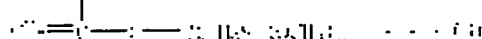
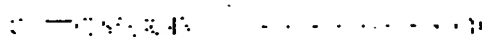
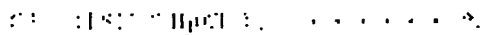
(5)

7

シラン (13)、 $\gamma$ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン (14)、 $\gamma$ -クロロプロピルトリメトキシシラン (15) 等を挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また、これらシランカップリング剤と水とを混合することによって得られるシランカップリング剤の加水分解物水溶液も用いることができる。なお、上記化合物の後ろに付記した番号は、下記構造式の番号に対応する。

【0042】

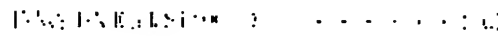
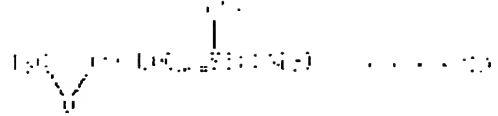
【化1】



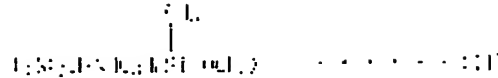
【0043】

【化2】

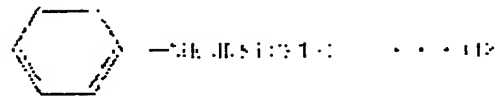
8



10



20



30



【0044】上記シランカップリング剤の含有量は、シリカゾル ( $\text{SiO}_2$ ) 100重量部に対して、固形分で、0.05~500重量部が好ましく、0.5~100重量部がより好ましく、1~75重量部が最も好ましい。シランカップリング剤の含有量が0.05重量部未満であると、上記中温領域で、接着層11の接着強度が低下してしまう。一方、500重量部を超えると、接着層11となるペーストを調製した際の該ペーストの安定性が著しく低下する。

【0045】上記シリカゾルは、水を媒体としてこれに平均粒径5~200 $\mu\text{m}$ 、好ましくは、10~150 $\mu\text{m}$ のコロイダルシリカ粒子が安定に分散している液状物である。上記コロイダルシリカ粒子の形状は球形、非球形のいずれでもよい。コロイダルシリカの形状及び大きさは、シリカゾルの製造法によって定められる。

【0046】このシリカゾルは、アルカリ性、酸性のいずれであってもよいが、 $\text{SiO}_2/\text{M}_2\text{O}$  (Mはアルカリ金属原子又はアミン、アンモニウム等の分子を表

50

す。)モル比が30以上のアルカリ性のものが好ましく、pHとしては9~12程度のものが特に好ましい。また、粒子径の異なるシリカゾルを混合して用いてもよく、混合ゾルを用いてもよい。用いられるシリカゾルとしては、SiO<sub>2</sub>濃度が1~50重量%程度のもものが好ましく、不純イオンをなるべく含有しないものが好ましい。

【0047】接着層11中のシリカゾルの含有量は、固形分で、5~40重量%が好ましく、10~30重量%がより好ましく、15~25重量%が最も好ましい。シリカゾルの含有量が5重量%未満であると、接着強度の低下を招き、一方、40重量%を超えると、熱伝導率の低下を招く。

【0048】上記有機バインダーとしては、例えば、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース、カルボキシセルロース等が挙げることができる。これらは、単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。これらのなかでは、カルボキシセルロースが好ましい。

【0049】接着層11中の有機バインダーの含有量は、固形分で、0.01~5重量%が好ましく、0.05~3重量%がより好ましく、0.1~1重量%が最も好ましい。有機バインダーの含有量が0.01重量%未満であると、接着層11に発生するマイグレーションを抑止することが困難となる。一方、5重量%を超えると、接着層11が高温にさらされて有機バインダーが焼失した場合に、接着強度が低下する場合がある。

【0050】上記無機繊維としては、例えば、シリカアルミナ、ムライト、アルミナ及びシリカから選ばれる少なくとも1種以上のセラミックファイバー等が挙げることができる。このような無機繊維は、シリカゾルや有機バインダーと絡み合うことで、接着層11の接着強度を向上させることができる。

【0051】上記無機繊維のショット含有量は1~10重量%であることが好ましく、1~5重量%であることがより好ましく、1~3重量%であることが最も好ましい。ショット含有量を1重量%未満にすることは、製造上困難であり、一方、10重量%を超えると、セラミック部材20の壁面を傷つける恐れがある。

【0052】上記無機繊維の繊維長は1~100μmであることが好ましく、1~50μmであることがより好ましく、1~20μmであることが最も好ましい。繊維長が1μm未満であると、その性質が粒子に近くなり接着強度の低下を招く。一方、100μmを超えると、接着層11中に均一に分散させることが困難となり、やはり接着強度の低下を招く。

【0053】また、上記無機繊維の繊維径は、3~15μmであることが好ましい。繊維径が3μm未満であると、その強度が低下し容易に切断されてしまうため、接着強度の低下を招く。一方、15μmを超えると、シリ

カゾルや有機バインダーとの絡み合いが阻害され、やはり接着強度の低下を招く。

【0054】接着層11中の無機繊維の含有量は、固形分で、25~60重量%が好ましく、30~50重量%がより好ましく、35~45重量%が最も好ましい。無機繊維の含有量が25重量%未満であると、接着層11の接着強度の低下を招く。一方、60重量%を超えると、熱伝導率の低下を招く。

【0055】また、上記無機粒子としては、例えば、炭化珪素、窒化珪素及び窒化硼素から選ばれる少なくとも1種以上の無機粉末又はウイスカーが挙げられる。このような無機粒子が、上記無機繊維の表面やシリカゾルの表面及び内部に介在することで、接着層11の熱伝導率を向上させることができる。

【0056】上記無機粒子の平均粒径は0.01~100μmであることが好ましく、0.1~15μmであることがより好ましく、0.1~10μmであることが最も好ましい。平均粒径が0.01μm未満であると、ある程度の熱伝導率を確保するためには大量の無機粒子が必要となり、また、このような粒径の小さな無機粒子を得ること自体が困難で、製造コストの高騰を招く。一方、100μmを超えると、逆に接着力及び熱伝導率の低下を招く。

【0057】接着層11中の無機粒子の含有量は、固形分で、10~50重量%が好ましく、15~35重量%がより好ましく、20~30重量%が最も好ましい。無機粒子の含有量が10重量%未満であると、熱伝導率の低下を招く。一方、50重量%を超えると、高温時での接着強度の低下を招く。

【0058】また、上記無機繊維及び無機粒子の代わりに、炭化珪素繊維を使用することが好ましい。上述した通り、上記無機繊維は、接着層11の接着強度を向上させる目的で添加され、上記無機粒子は、接着層11の熱伝導率を向上させる目的で添加されるものである。しかしながら、上記無機粒子は、接着層11の接着強度を減退させる傾向があるため、接着層11の接着強度及び熱伝導率の両方を高いレベルで確保するには一定の限界がある。しかしながら、上記無機繊維及び無機粒子の代わりに炭化珪素繊維を使用することで、接着層11の接着強度と熱伝導率とを高いレベルで確保することができるようになる。

【0059】これは、接着層11中の炭化珪素繊維とシリカゾル、及び、炭化珪素繊維と有機バインダーとの絡み合うことにより、接着層11の接着強度の向上を図ることができるとともに、無機粒子を添加するのに比べ、接着層11中で炭化珪素繊維同士が絡み合うことでその接触面積が増加し、熱伝導率が向上するものと考えられる。

【0060】上記炭化珪素繊維の繊維長は、20~300μmであることが好ましく、50~200μmである

ことがより好ましい。繊維長が20 $\mu$ m未満であると、その性質が粒子に近くなり接着強度の低下を招く場合がある。一方、300 $\mu$ mを超えると、接着層11中に均一に分散させることが困難となり、やはり接着強度の低下を招く場合がある。また、その繊維径は、3~15 $\mu$ mであることが好ましい。繊維径が3 $\mu$ m未満であると、炭化珪素繊維の強度が低下し容易に切断されてしまうため接着強度の低下を招く場合があり。一方、15 $\mu$ mを超えると、シリカゾルとの絡み合いが阻害され、接着強度の低下を招く場合があり、また、このような太い炭化珪素繊維を得ること自体が困難であり原料コストの高騰を招く。

【0061】接着層11中に上記炭化珪素繊維を添加する場合、接着層11中の炭化珪素繊維の含有量は、固形分で、3~80重量%が好ましく、10~70重量%がより好ましく、40~60重量%がさらに好ましい。炭化珪素繊維の含有量が3重量%未満であると、熱伝導率の低下を招き、一方、80重量%を超えると、接着層11が高温にさらされた場合に、接着強度の低下を招く。

【0062】接着層11中には、シランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子のほかに、少量の水分や溶剤等を含んでいてもよいが、このようなシリカゾル中等の水分や溶剤等は、通常、接着層用のペーストを塗布した後の加熱等により殆ど飛散する。

【0063】上述の通り、本発明のセラミック構造体は、複数のセラミック部材を結束する接着層中に、少なくともシランカップリング剤、シリカゾル、有機バインダー、無機繊維及び無機粒子を含むものであるため、複数のセラミック部材を結束する接着層の熱伝導率が高く、その再生処理において、堆積したパティキュレート完全に燃焼除去することができる。さらに、本発明のセラミック構造体を構成する上記接着層は、中温領域での接着強度も大きいので、高温の排気ガスや再生時の加熱等により接着層が加熱された場合であっても、上記接着層の接着力が低下することがなく、耐久性に優れたものとなる。

【0064】次に、本発明のセラミック構造体の製造方法について説明する。なお、以下の説明においては、セラミック構造体を構成するセラミック部材の原料として炭化珪素を用いることとする。

【0065】初めに、まず、炭化珪素成形体を作製する。この工程においては、炭化珪素粉末とバインダーと分散媒液とを混合して成形体製造用の混合組成物を調製した後、この混合組成物の押出成形を行うことにより、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された柱状の炭化珪素成形体を作製し、この後、この成形体を乾燥させることにより分散媒液を蒸発させ、炭化珪素粉末と樹脂とを含む炭化珪素成形体を作製する。なお、この炭化珪素成形体には、少量の分散媒液が含まれていてもよ

い。

【0066】この炭化珪素成形体の外観の形状は、図2に示した多孔質セラミック部材20とほぼ同形状であるほか、楕円柱状や三角柱状等であってもよい。なお、本工程では、充填材22に相当する部分は空洞となっている。

【0067】上記バインダーとしては特に限定されず、例えば、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリエチレングリコール、フェノール樹脂、エポキシ樹脂等を挙げることができる。上記バインダーの配合量は、通常、上記炭化珪素粉末100重量部に対して、1~10重量部程度が好ましい。

【0068】上記分散媒液としては特に限定されず、例えば、ベンゼン等の有機溶媒；メタノール等のアルコール、水等を挙げることができる。上記分散媒液は、上記樹脂の粘度が一定範囲内となるように、適量配合される。

【0069】次に、封口工程として、作製された炭化珪素成形体の上記貫通孔を充填ペーストにより封口パターン状に封口する工程を行う。この際には、炭化珪素成形体の貫通孔に、封口パターン状に開孔が形成されたマスクを当接し、充填ペーストを上記マスクの開孔から上記貫通孔に侵入させることにより、充填ペーストで一部の貫通孔を封口する。

【0070】上記充填ペーストとしては、セラミック成形体の製造の際に使用した混合組成物と同様のものか、又は、上記混合組成物にさらに分散媒を添加したものが好ましい。

【0071】次に、脱脂工程として、上記工程により作製された炭化珪素成形体中の樹脂を熱分解する工程を行う。この脱脂工程では、通常、上記炭化珪素成形体を脱脂用治具上に載置した後、脱脂炉に搬入し、酸素含有雰囲気下、400~650℃に加熱する。これにより、バインダー等の樹脂成分が揮散するとともに、分解、消失し、ほぼ炭化珪素粉末のみが残留する。

【0072】次に、焼成工程として、脱脂した炭化珪素成形体を、焼成用治具上に載置して焼成する工程を行う。この焼成工程では、窒素、アルゴン等の不活性ガス雰囲気下、2000~2200℃で脱脂した炭化珪素成形体を加熱し、炭化珪素粉末を焼結させることにより、多数の貫通孔が隔壁を隔てて長手方向に並設された柱状の炭化珪素焼結体を製造する。

【0073】なお、脱脂工程から焼成工程に至る一連の工程では、焼成用治具上に上記炭化珪素成形体を載せ、そのまま、脱脂工程及び焼成工程を行うことが好ましい。脱脂工程及び焼成工程を効率的に行うことができ、また、載せ代え等において、炭化珪素成形体が傷つくのを防止することができるからである。

【0074】このようにして、多数の貫通孔が隔壁を隔



てて長手方向に並設され、上記隔壁がフィルタとして機能するように構成された多孔質炭化珪素焼結体を製造した後、この多孔質炭化珪素焼結体の結束工程として、多孔質炭化珪素焼結体の外壁部分に上述した接着層を形成し、所定の大きさになるように上記多孔質炭化珪素焼結体を複数個結束してセラミックブロックを作製する。

【0075】その後、このセラミックブロックを50～100℃、1時間の条件で加熱して乾燥、硬化させ、その後、例えば、ダイヤモンドカッター等を用いて、その外周部を図1に示したセラミック構造体10とほぼ同様に切削した後、その外周部にシール材13aを形成することにより、本発明のセラミック構造体の製造を終了する。

【0076】以上説明した各工程を実施することで、熱伝導率が高く、各セラミック部材の接着強度にも優れたセラミック構造体を製造することができる。

【0077】

【実施例】以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。

【0078】実施例1

平均粒径10 $\mu$ mの $\alpha$ 型炭化珪素粉末70重量部、平均粒径0.7 $\mu$ mの $\beta$ 型炭化珪素粉末30重量部、メチルセルロース5重量部、分散剤4重量部、水20重量部を配合して均一に混合することにより、原料の混合組成物を調製した。この混合組成物を押出成形機に充填し、押出速度2cm/分にてハニカム形状の生成形体を作製した。この生成形体は、図2に示した多孔質セラミック部材20とほぼ同様であり、その大きさは33mm $\times$ 33mm $\times$ 300mmで、平均気孔径が1～40 $\mu$ m、貫通孔の数が31/cm<sup>2</sup>で、隔壁の厚さが0.35mmであった。

【0079】この生成形体の乾燥体に、上記混合組成物と同成分の充填剤ペーストを用いて、炭化珪素焼結体の貫通孔の所定箇所に充填剤を充填した後、450℃で脱脂し、さらに、2200℃で加熱焼成することで多孔質炭化珪素部材を製造した。

【0080】次に、シリカゾル（ゾル中のSiO<sub>2</sub>の含有量：30重量%）20重量%、シランカップリング剤としてビニルトリス（ $\beta$ メトキシエトキシ）シラン0.6重量%、有機バインダーとしてカルボキシメチルセルロース0.4重量%、無機繊維としてシリカーアルミナセラミックファイバー（ショット含有率：2.7%、繊維長30～100 $\mu$ m）40重量%、無機粒子として炭化珪素粉末（平均粒径0.5 $\mu$ m）26重量%、及び、水13重量%を混合、混練して接着層用ペーストを調製した。

【0081】次に、作製した多孔質炭化珪素部材の1の外周面に上記接着層用ペーストを貼着し、接着層を形成した。そして、この接着層の上に他の多孔質炭化珪素部

材を載置した後、100℃、1時間で乾燥、硬化させ、2つの多孔質炭化珪素部材が結合した多孔質炭化珪素部材の結合体を作製した。

【0082】実施例2

シリカゾル（ゾル中のSiO<sub>2</sub>の含有量：30重量%）20重量%、シランカップリング剤としてビニルトリス（ $\beta$ メトキシエトキシ）シラン0.6重量%、有機バインダーとしてカルボキシメチルセルロース0.4重量%、繊維長100～200 $\mu$ m、繊維径3～15 $\mu$ mの炭化珪素繊維66重量%、及び、水13重量%を用いたほかは、実施例1と同様に多孔質炭化珪素部材の結合体を作製した。

【0083】比較例1

無機バインダーとしてシリカゾル（ゾル中のSiO<sub>2</sub>の含有量：30重量%）13.3重量%、無機繊維としてシリカーアルミナセラミックファイバー（ショット含有率：2.7%、繊維長：30～100mm）44.2重量%、および水42.5重量%を用いたほかは、実施例1と同様に多孔質炭化珪素部材の結合体を作製した。本比較例1においては、接着層の乾燥を行っている際、接着層を構成するバインダーや部材のマイグレーションが発生し、接着層が不均一になってしまった。

【0084】比較例2

無機バインダーとしてシリカゾル（ゾル中のSiO<sub>2</sub>の含有量：30重量%）7重量%、有機バインダーとしてカルボキシメチルセルロース0.5重量%、無機繊維としてシリカーアルミナセラミックファイバー（ショット含有率：3%、繊維長：0.1～100mm）23.3重量%、平均粒径0.3 $\mu$ mの炭化珪素粉末30.2重量%、及び、水39重量%を用いたほかは、実施例1と同様に多孔質炭化珪素部材の結合体を作製した。

【0085】実施例1～2及び比較例1～2で製造した多孔質炭化珪素部材の結合体の性能評価を以下に示す方法にて測定した。

【0086】評価方法

（1）接着強度の測定

図4に示したように、台の上に2個の三角柱状部材を配置し、続いて、上記結合体を、両端の多孔質炭化珪素部材が上記三角柱状部材の上に載るように載置し、中心の接着層部分に荷重をかけ、接着層に剥がれが生じた時の荷重を測定した。また、有機バインダーが分解、除去される中温領域である500℃まで加熱した際の接着強度についても同様の評価を行い、さらに、実際の使用では、室温～900℃程度までの急熱、急冷が予想されるため、室温～900℃のヒートサイクル試験（100回）を行った後のものについても同様の評価を行った。その結果を下記の表1に示す。

【0087】（2）熱伝導率の測定

図5に示すように、上記結合体を、2個の多孔質炭化珪素部材を積み重ねるように載置した後、その外周を断熱



材 30 で囲い、ヒータ 31 の上に設置して 600℃ で 30 分間加熱することにより、上部の温度  $T_1$  と下部の温度  $T_2$  との温度差を測定した。その結果を表 1 に示す。

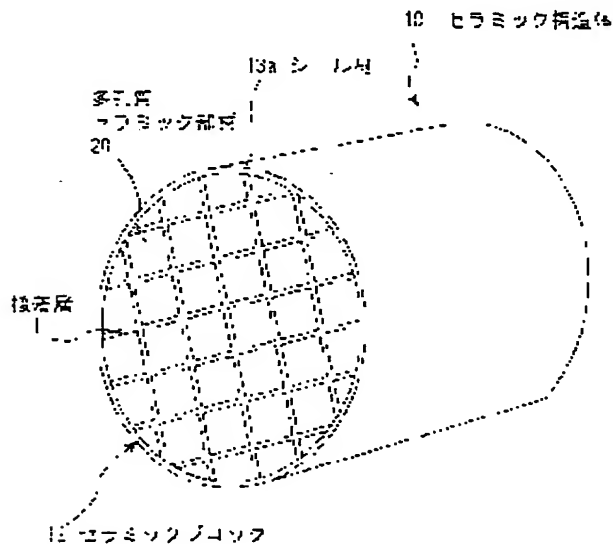
試料番号	上部温度 $T_1$ (℃)	下部温度 $T_2$ (℃)	温度差 $T_1 - T_2$ (℃)
実施例 1	247	258	11
実施例 2	247	258	11
比較例 1	214	242	28
比較例 2	214	242	28

【0089】表 1 に示した結果から明らかなように、実施例 1～2 に係る多孔質炭化珪素部材の結合体の接着層の代表的な接着強度は 2.47～2.58 MPa であり、その上端と下端との温度差は 20～25℃ であるが、比較例 1～2 に係る多孔質炭化珪素部材の結合体の接着層の代表的な接着強度は 2.14～2.42 MPa、その温度差は 50～80℃ といずれも、実施例に係る多孔質炭化珪素部材の結合体よりも劣ったものであった。なお、本実施例及び比較例においては、多孔質炭化珪素部材を 2 個だけ結合したものを使用して、その接着強度及び熱伝導率を測定したが、実際のセラミック構造体には、多数の多孔質炭化珪素部材を結合するため、接着強度及び熱伝導率の値の差はさらに顕著なものとなる。

#### 【0090】

【発明の効果】本発明のセラミック構造体は、上述の通りであるので、その再生処理において、堆積したパーティキュレート完全に燃焼除去することができるとともに、その温度が有機バインダーの耐熱温度を超えても、接着層の接着強度が低下することがなく耐久性に優れたものとなる。

【図 1】



【0088】

【表 1】

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明のセラミック構造体の一実施形態を模式的に示した斜視図である。

【図 2】本発明のセラミック構造体を構成する多孔質セラミック部材を模式的に示した斜視図である。

【図 3】シランカップリング剤の作用機構を説明する説明図である。

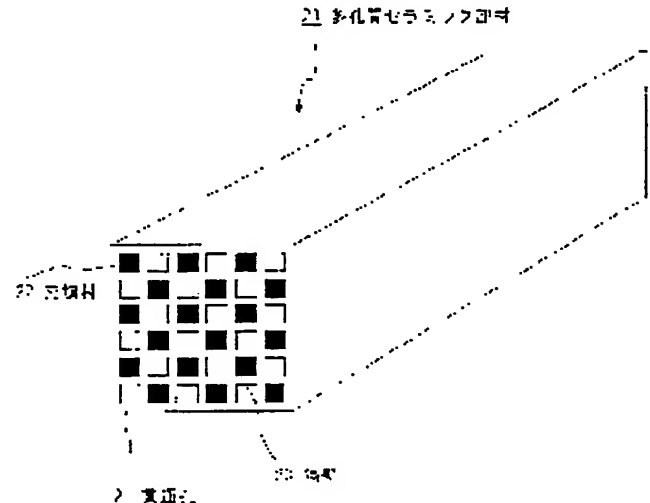
【図 4】接着強度の測定試験の説明図である。

【図 5】熱伝導率の測定試験の説明図である。

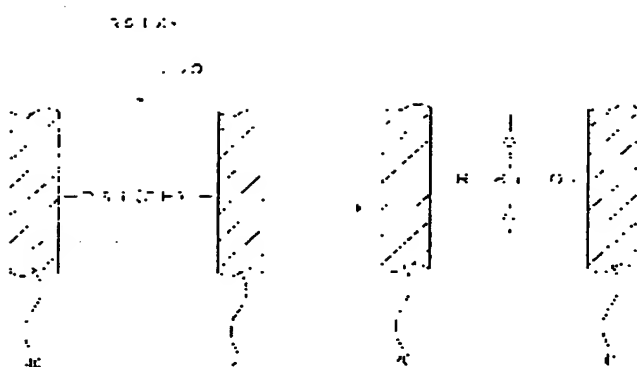
#### 【符号の説明】

- 10 セラミック構造体
- 11 接着層
- 12 セラミックブロック
- 13 シール材ペースト
- 13a シール材
- 20 多孔質セラミック部材
- 21 貫通孔
- 22 充填材
- 23 隔壁
- 30 断熱材
- 31 ヒータ

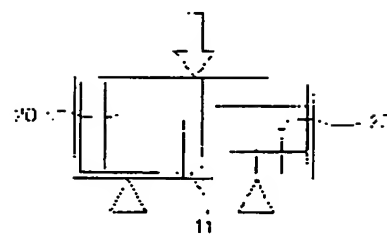
【図 2】



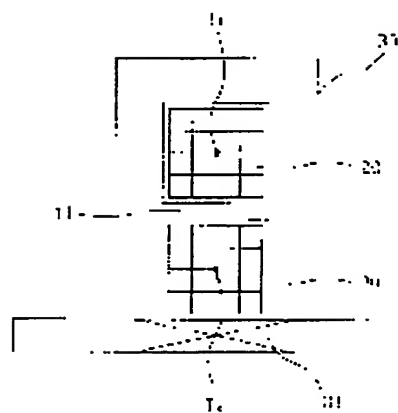
【図 3】



【図 4】



【図 5】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ **BLACK BORDERS**
- ☒ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**